

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-215709

(43)Date of publication of application : 24.08.1993

(51)Int.Cl.

G01N 27/30

G01N 27/12

G01N 27/327

(21)Application number : 04-056326

(71)Applicant : NGK SPARK PLUG CO LTD

(22)Date of filing : 05.02.1992

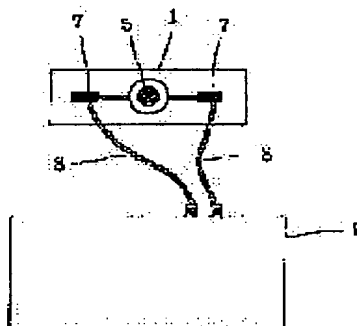
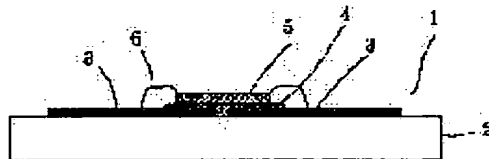
(72)Inventor : ANDO MIGIWA
OKURA TSUNETOSHI

(54) HYDROGEN PEROXIDE DETECTION ELEMENT AND CHEMICAL SENSOR USING IT

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a hydrogen peroxide detection element which can perform measurement readily and easily and can be miniaturized easily and is suited for throwaway, and a chemical sensor using it.

CONSTITUTION: A pair of nickel electrodes 3 which are laid out with a spacing of 0.5mm on an insulation support 2 which consists of a glass substrate are formed by using the vacuum deposition method and then a thin film 4 which is made of molybdenum dioxide is formed on it by sputtering. Then, a hydrogen peroxide transmission film 5 which is obtained by dipping n-butylalcohol is superposed on a paper which is approximately 50 μ m thick and further the peripheral part is coated with an insulation sealing material 6, thus obtaining a hydrogen peroxide detection element 1.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 17.04.1997

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2955905

[Date of registration] 23.07.1999

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

Best Available Copy

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-215709

(43)公開日 平成5年(1993)8月24日

(51)Int.Cl.⁵

G 0 1 N 27/30

27/12

27/327

識別記号

Z 7235-2J

C 7363-2J

7235-2J

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

G 0 1 N 27/ 30

3 5 3 B

審査請求 未請求 請求項の数6(全 8 頁)

(21)出願番号 特願平4-56326

(22)出願日 平成4年(1992)2月5日

(71)出願人 000004547

日本特殊陶業株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号

(72)発明者 安藤 汀

名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日本特殊
陶業株式会社内

(72)発明者 大蔵 常利

名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日本特殊
陶業株式会社内

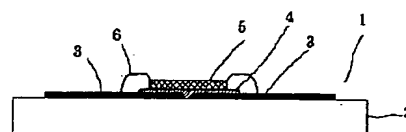
(54)【発明の名称】 過酸化水素検出素子およびこれを用いた化学センサ

(57)【要約】

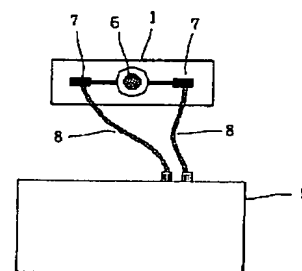
【目的】迅速で簡便な測定が可能であるとともに、小型化が容易で、使い捨て使用に適した過酸化水素検出素子およびこれを用いた化学センサを提供する。

【構成】ガラス製の基板よりなる絶縁性支持体2の上に、0.5mmの間隔をおいて配置された一対のニッケル電極3を真空蒸着法を用いて形成し、この上に二酸化モリブデンの薄膜4をスパッタリング法にて形成した。次いで、厚さ約50 μ mの紙にn-ブチルアルコールを含浸させて得た過酸化水素透過性膜5を上重ね、さらに、その周辺部を絶縁性シール材6で被覆し、過酸化水素検出素子1を得た。

(a)



(b)



【特許請求の範囲】

【請求項1】 絶縁性支持体上に形成され、過酸化水素により酸化または還元される性質を有する感応膜と、前記感応膜に接した少なくとも一対の金属電極と、前記感応膜上に形成した過酸化水素透過性膜とを有することを特徴とする過酸化水素検出素子。

【請求項2】 前記感応膜は、標準状態における酸化反応または還元反応のギブズエネルギー (ΔG_{r298}) の絶対値が 200 KJ/mol 以下であることを特徴とする請求項1に記載の過酸化水素検出素子。

【請求項3】 前記感応膜が二酸化モリブデン (MoO_2)、亜酸化銅 (Cu_2O)、酸化銀 (Ag_2O)、酸化マンガン (MnO)、酸化バナジウム (V_2O_4) のいずれか1種以上を主成分として含むものであることを特徴とする請求項1に記載の過酸化水素検出素子。

【請求項4】 前記感応膜が銅 (Cu)、シリコン (Si) のいずれか1種以上を主成分として含むものであることを特徴とする請求項1に記載の過酸化水素検出素子。

【請求項5】 請求項1ないし請求項4に記載の過酸化水素検出素子の過酸化水素透過性膜上に、過酸化水素を生成する触媒を担持し、または該触媒の担持体を設けたことを特徴とする化学センサ。

【請求項6】 前記触媒が酵素であることを特徴とする請求項5に記載の化学センサ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、医療、医薬品製造、食品工業、化学工業、環境事業等において用いられる、小型化が容易で使い捨て使用に適した過酸化水素検出素子およびこれを用いた化学センサに関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来より、溶液中の被測定物質の濃度を測定する方法として、被測定物質と反応する試薬や酵素等を用い、その反応に関与する過酸化水素の濃度から間接的に求める方法が知られている。過酸化水素の濃度の測定方法としては、過酸化水素が電極上で酸化される時の電流値を測定する電極方式の検出方法、過酸化水素との反応生成物により発色する発色剤を併用し、光の吸光度の変化を測定する検出方法、過酸化水素との反応生成物により蛍光を発する蛍光剤を使用し、蛍光の強度を測定する検出方法等が知られている。さらに、これらの過酸化水素検出方法に加えて、反応により過酸化水素を生じる酵素を高分子等の固定化担体膜に担持させ、さらにこの固定化膜を前記過酸化水素電極または発色素子等の上に被覆することにより化学センサを構成し、グルコース、アルコール等の濃度の測定に利用されている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】従来の過酸化水素電極は、ガラス製の絶縁管の中に白金よりなる陽極（アノー

ド）と銀／塩化銀よりなる陰極（カソード）とを配し、この両極間に定電圧（約 0.6 V ）を印加し、過酸化水素を白金陽極上で酸化するときの限界拡散電流値を測定するという方式が採られている。しかし、この電極を用いた検出方法では電極の構成が複雑であるため小型化が難しく、高価なものになってしまうため、医療計測などのような使い捨て使用には不適である。

【0004】一方、吸光度測定方式の検出方法では、その用途が発色剤が使用できる場合に限定され、同様に蛍光強度測定方式の検出方法では、その用途が蛍光剤が使用できる場合に限定される。さらに、吸光度測定方式または蛍光強度測定方式の検出方法においては発色剤または蛍光剤を添加する必要がある、測定に手間がかかる等の不具合がある。これら従来の過酸化水素濃度の測定方法に存在する問題点は、化学センサに利用した場合においても同様な問題点として残されており、改善が望まれている。

【0005】本発明の目的は、上記課題を解決し、迅速で簡便な測定が可能であるとともに、小型化が容易で使い捨て使用に適した過酸化水素検出素子およびこれを用いた化学センサを提供することである。

【0006】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するための手段として、本発明は、絶縁性支持体上に形成され、過酸化水素により酸化または還元される性質を有する感応膜と、前記感応膜に接した少なくとも一対の金属電極と、前記感応膜上に形成した過酸化水素透過性膜とを有することを特徴とする過酸化水素検出素子を第1の要旨とする。また、本発明は、前記過酸化水素検出素子の過酸化水素透過性膜上に過酸化水素を生成する触媒を担持し、または該触媒の担持体を設けたことを特徴とする化学センサを第2の要旨とする。

【0007】本発明の過酸化水素検出素子に用いる感応膜は、過酸化水素により酸化または還元される性質を有する金属酸化物または金属であることが好ましい。さらには、標準状態（絶対温度 298.15 度、圧力 1 気圧）における酸化反応または還元反応のギブズエネルギー (ΔG_{r298}) の絶対値が 200 KJ/mol 以下であることは過酸化水素の検出感度が高くなり精度のよい測定ができるのでより好ましい。反応のギブズエネルギー (ΔG_{r298}) は電気化学便覧（電気化学協会編）に記載されているように、反応前後の各物質の標準生成ギブズエネルギー (ΔG_{f298}) から次のようにして求められる。

$$\Delta G_{r298} = \Delta G_{f298}(\text{生成物}) - \Delta G_{f298}(\text{反応物})$$

【0008】各種の金属酸化物または金属と過酸化水素との反応系における上記のギブズエネルギー (ΔG_{r298}) について調査を行ない、反応のギブズエネルギーの絶対値が前記範囲の場合に過酸化水素に対して高い感

度を示すことを突き止めた。表1に好ましい材料とその反応のギブズエネルギーの例を示す。これら感応膜の材質は、測定液中に含まれる妨害物質の種類や過酸化水素の濃度によって適宜選択して用いるとよい。本発明にお*

*ける特に好ましい感応膜の材料は、二酸化モリブデン (MoO_2) と亜酸化銅 (Cu_2O) である。
【0009】
【表1】

材料 (反応物)	$\Delta G_{r,98}$ (KJ/mol)	生成物
Cu_2O	16.3	CuO
Ag_2O	11.2	Ag
MoO_2	103.6	$\text{H}_2 \cdot \text{MoO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$
MnO	102.3	MnO_2
V_2O_4	101.2	V_2O_5
Cu	-129.7	CuO
Si	-126.4	SiO

【0010】また、これらの感応膜の形成は、真空蒸着法、スパッタリング法、ゾルゲル法、印刷法等の公知の手法を用いることができる。なお、これらの金属酸化物または金属のうち2種以上のものを混合したり、あるいは微量の添加物を加えることなどにより、形成した感

20

20 応膜の電気抵抗値を計測に適した値に調節してもよい。電気抵抗値の調節剤としては、過酸化水素に対して不活性なカーボン粉末が特に好ましい。

【0014】

【0011】本発明の過酸化水素検出素子に用いる絶縁性支持体は、電気絶縁性、耐水性にすぐれ、少なくとも取扱いに必要な機械的強度を有するものであればよく、アルミナ等のセラミックスや石英ガラス、フェノール樹脂等を用いることができる。通常、製作の容易な板状のものを支持体に用いるが、使用条件に応じて棒状、筒状、針状等の形状の支持体を用いることもできる。

30

【作用】上記のようにして構成された本発明の過酸化水素検出素子において過酸化水素濃度の測定が行なえる理由は次の通りである。まず、過酸化水素が含まれる被測定液を本発明の過酸化水素検出素子の過酸化水素透過性膜に接しめることにより、過酸化水素は過酸化水素透過性膜を透過して、金属酸化物または金属よりなる感応膜に達し、ここで感応膜を酸化もしくは還元する。感応膜は酸化もしくは還元されることによってその電気抵抗値が変化するが、その変化量は感応膜に達した過酸化水素量に依存する。したがって、形成した電極にて感応膜の電気抵抗値の変化を測定するか、または定電圧印加のもとで発生する電流値の変化を測定することにより、目的とする過酸化水素の濃度を知ることができる。なお、印加電圧は直流または交流のどちらを用いても構わない。

【0012】本発明の過酸化水素検出素子に用いる金属電極は、感応膜の電気抵抗値の測定に支障のない金属であればよく、白金、金、銀、ニッケル、アルミニウム等を用いることができる。これらは絶縁性支持体表面に真空蒸着法、スパッタリング法、印刷法等により所定のパターンに形成される。また、この金属電極は感応膜を絶縁性支持体上に形成した後に前記感応膜の上に形成してもよい。なお、金属電極は互いに接しない少なくとも一対の電極で構成され、その形状は円形、方形、楕形など種々のものを採り得るが、感応膜との接触面積、及び、一対をなす各電極の間隔は一定とするのが個体間のばらつきを少なくするためには好ましい。また、金属電極の対の数は2以上としてもよく、各電極対の印加電圧や面積比率を変えることによってS/N比を向上させることもできる。

40

【0015】また、本発明の過酸化水素検出素子は、それのみにて液中の過酸化水素濃度の測定に用いることができるが、反応により過酸化水素を生成する触媒を担持し、または該触媒の担持体を設けて化学センサを構成することにより、過酸化水素以外の特定物質の濃度の測定にも利用することができる。前記触媒としては特に酵素が好ましく、たとえば、グルコースオキシダーゼ、コレステロールオキシダーゼ、乳酸オキシダーゼ、アミノ酸オキシダーゼ、ウリカーゼ、コリンオキシダーゼを用いた場合、それぞれ、グルコース、コレステロール、乳酸、アミノ酸、尿酸、コリンの濃度を測定することができる。

【0013】本発明の過酸化水素検出素子に用いる過酸化水素透過性膜は、過酸化水素を選択的に透過させる性質を有し、なおかつ電気絶縁性の膜であることが望ましい。ここで選択的のとは、必ずしも過酸化水素のみを透過させることに限定することを意味するものではなく、

50

【0016】これらの触媒は過酸化水素透過性膜上に直

5

接担持してもよいが、別途用意した触媒担持体を前記過酸化水素透過性膜上に設けてもよい。触媒担持体に用いる担体材料には、水に不溶性の有機高分子や繊維、セラミックス等を用いることができるが、測定時の応答性を上げるためには多孔質で膜状のものが好ましい。

【0017】触媒の担持方法は特に限定されず、公知の手法で行なうことができる。たとえば、触媒として酵素を用いた場合、酢酸セルロースの溶液中に酵素を混合し、過酸化水素検出素子の過酸化水素透過性膜上にディップコーティングした後、乾燥させて、さらにグルタルアルデヒドで架橋処理を施すことにより可能である。また、過酸化水素透過性膜上に直接触媒を担持させずに別途触媒担持体を用意する場合には、酵素を混合した酢酸セルロース溶液を適当な大きさのガラス板等にディップコーティングした後乾燥させ膜状とし、さらにグルタルアルデヒドで架橋処理を施し、これをガラス板より剥して前記過酸化水素透過性膜の上に被覆したり、または、多孔質のセラミック膜に酵素を含浸させて前記過酸化水素透過性膜の上に密着固定させるなどの方法を採用得る。

【0018】本発明の過酸化水素検出素子およびこれを用いた化学センサは、極めて簡単な電極構成であり、小型化が容易でしかも安価に得ることが可能であるため、主に使い捨て方式の検出素子として使用する用途に適している。例えば、医療における血液中のグルコース濃度（血糖値）の測定や尿中成分の検査に極めて有効である。

【0019】

【実施例】以下に実施例を示して本発明を具体的に説明する。

（第1実施例）まず、過酸化水素検出素子を次に示す手順に従って作製した。図1の（a）に示すように、絶縁性支持体として用いたガラス製基板（26mm×76mm×0.9mm）2の上に、0.5mmの間隔において配置された一対のニッケル電極（2mm×10mm、厚さ0.2μm）3を真空蒸着法を用いて形成した。次いで、このニッケル電極の上に、感応膜として二酸化モリブデン（MoO₂）の薄膜（直径5mm、厚さ約520オングストローム）4をスパッタリング法にて形成した。次いで、厚さ約50μmの紙にn-ブチルアルコールを含浸させて過酸化水素透過性膜5とし、これを二酸化モリブデン薄膜4の上に重ね、さらに、その周辺部を絶縁性シール材6で被覆し、過酸化水素検出素子1とした。

【0020】得られた過酸化水素検出素子1のニッケル電極の端子部7にリード線8を介してポテンショスタット9を接続し（図1の（b）参照）、電極間に2Vの直流電圧を印加しておき、所定濃度の過酸化水素溶液30μlを過酸化水素透過性膜5上に滴下してから50秒後の電流値を測定した。過酸化水素濃度0ppmの時の電

6

流値を100とした場合における各種過酸化水素濃度に対する相対電流値を図2のグラフに示す。過酸化水素濃度0～500ppmにおいて相対電流値との間に勾配を有する良好な直線関係が得られており、このことより、本実施例の過酸化水素検出素子を用いて過酸化水素濃度を精度よく測定できることが示された。なお、使用後の感応膜の結晶構造を薄膜X線回折法にて調べたところ、モリブデン酸（H₂・MoO₄・H₂O）の生成が認められ、過酸化水素によって酸化されていることが確認された。

【0021】（第2実施例）次に触媒を担持させて化学センサを構成した例として、触媒として酵素（グルコースオキシダーゼ）を用いて作製したグルコースセンサについて説明する。図3に示すように、第1実施例に記載の手順において感応膜を亜酸化銅（Cu₂O）を用いて作製した過酸化水素検出素子に対して、過酸化水素透過性膜5の上に100メッシュのステンレス製金網10をスペーサとしてのせ、次いで、別途用意した酵素担持体11を前記ステンレス製金網10の上にのせてグルコースセンサ12を得た。ここで酵素担持体11は、直径6mm、厚さ0.3mmの和紙を、アルブミン50mgとグルコースオキシダーゼ50mgとリン酸塩緩衝液（pH=7.0）1mlとよりなる混合液中に浸し、温度4℃の冷蔵庫中で48時間の乾燥を行なって、前記和紙に酵素（グルコースオキシダーゼ）を固定化させたものを使用した。

【0022】このグルコースセンサ12について、第1実施例と同様にして（図1の（b）参照）、ニッケル電極の端子部7にリード線8を介してポテンショスタット9を接続し、電極間に2Vの直流電圧を印加しておき、所定濃度のグルコース溶液30μlを酵素担持体上に滴下してから50秒後の電流値を測定した。グルコース濃度0mmol/lの時の電流値を100とした場合における各種グルコース濃度に対する相対電流値を図4に示す。グルコース濃度0～40mmol/lにおいて相対電流値との間に勾配を有する良好な直線関係が得られ、このことより、本実施例のグルコースセンサを用いてグルコース濃度を精度よく測定できることが示された。

【0023】（第3実施例）感応膜が過酸化水素により還元される例として、感応膜に酸化銀（Ag₂O）を用いた過酸化水素検出素子に、触媒として酵素（ウリカーゼ）を担持させて構成した化学センサ（尿酸センサ）について説明する。絶縁性支持体として用いたガラス製基板（26mm×76mm×0.9mm）の上に、0.5mmの間隔において配置された一対の白金電極（2mm×10mm、厚さ0.2μm）を真空蒸着法を用いて形成した。

【0024】一方、酸化銀粉末90重量%に電気抵抗値の調節剤としてカーボン粉末を10重量%混合し、この混合粉末100重量部に対しエチルセルロース5重量

部、ブチルカルビトール20重量部を加えて乳鉢で混練し、ペーストとした。次いで、このペーストを前記白金電極上にスクリーン印刷し、120℃で15時間乾燥させて感応膜(5mm×5mm、厚さ0.1mm)を形成した。この感応膜の上にシリコングリースを薄く塗布して過酸化水素透過性膜とし、その周辺部を絶縁性シール材で被覆して過酸化水素検出素子とした。さらに、この過酸化水素透過性膜の上に、第2実施例と同様にして用意した酵素担持体(ただし、酵素としてウリカーゼを使用)をのせて尿酸センサを得た。この構造は第2実施例の図3とほぼ同じであるので図を省略する。

【0025】この尿酸センサについて、第2実施例と同様にして、白金電極の端子部にリード線を介してポテンショスタットを接続し、電極間に5Vの直流電圧を印加しておき、所定濃度の尿酸溶液30μlを酵素担持体上に滴下してから50秒後の電流値を測定した。所定濃度の尿酸溶液に対する相対電流値を測定した結果を図5に示す。尿酸濃度0~120mg/dlにおいて相対電流値との間に勾配を有する良好な直線関係が得られ、本実施例の尿酸センサを用いて尿酸を精度よく測定できることが示された。また、使用後の感応膜にはX線回折法により金属銀(Ag)の生成が認められ、感応膜が還元されていることが確認された。

【0026】(第4実施例)他の化学センサの構成例として、過酸化水素検出素子の感応膜に金属銅(Cu)を用いたコリンセンサについて説明する。第1実施例と同様なニッケル電極を形成した絶縁性支持体上に、感応膜として金属銅を真空蒸着して、この感応膜上に厚さ1μmのシリコングムを被覆して過酸化水素透過性膜とし、その周辺部を絶縁性シール材で被覆して過酸化水素検出素子とした。さらに、この過酸化水素透過性膜上に酵素(コリンオキシダーゼ)を担持させた綿布をのせて、コリンセンサを得た。この構造は第2実施例の図3とほぼ同じであるので図を省略する。

【0027】このコリンセンサについて、第2実施例と同様にして、ニッケル電極の端子部にリード線を介してポテンショスタットを接続し、電極間に0.1Vの直流電圧を印加しておき、所定濃度のコリン溶液10μlを酵素担持体上に滴下してから50秒後の電流値を測定した。所定のコリン濃度に対する相対電流値を図6のグラフに示す。コリン濃度0~100mg/dlにおいて良好な直線関係が得られた。また、使用後の感応膜にはX線回折法により酸化銅(CuO)の生成が認められ、感応膜の酸化反応が確認された。

【0028】(比較例)比較例として、感応膜に酸化スズ(SnO)を用いた過酸化水素検出素子、及び、酸化チタン(TiO)を用いた過酸化水素検出素子について説明する。ちなみに、酸化スズ(SnO)の酸化反応のギブズエネルギーΔGr298は262.7KJ/mol、酸化チタン(TiO)では389.5KJ/molであ

る。これらの感応膜材料に対し第1実施例と同様の手順を用いて過酸化水素検出素子をそれぞれ作製し、過酸化水素濃度に対する相対電流値を調べたところ、ともに図7に示すように全く変化が見られず、過酸化水素濃度の測定はできなかった。また、使用後に感応膜の結晶構造を薄膜X線回折法にて調べたところ、使用前と変化はなく、過酸化水素により酸化も還元もされてはいなかった。

【0029】

【発明の効果】本発明の過酸化水素検出素子は、過酸化水素によって酸化または還元されやすい金属酸化物もしくは金属よりなる感応膜を絶縁性支持体上に形成し、さらにこの上に過酸化水素透過性膜を形成したことにより、精度の高い過酸化水素濃度の測定を迅速かつ簡便に行なうことができる。

【0030】また、さらにこの過酸化水素透過性膜上に触媒を担持するか、または、触媒担持体を設けることにより、特定の化学物質の測定を目的とした各種の化学センサにも広く利用することができる。また、酵素を触媒として用いる場合、触媒担持体を形成する前にオートクレーブ、乾熱滅菌、薬液滅菌等のさまざまな滅菌処理を施すこともできる。さらに、これらの過酸化水素検出素子およびこれを用いた化学センサは、構造が簡易であるので形状の変更や小型化が容易であるとともに、複数の種類のセンサを一体化して多機能センサとするのにも適している。特に、使い捨て使用に好適なセンサを安価に得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】第1実施例の過酸化水素検出素子の断面図と接続概略図である。

【図2】第1実施例における過酸化水素濃度と電流値との関係を示すグラフである。

【図3】第2実施例のグルコースセンサの断面図である。

【図4】第2実施例におけるグルコース濃度と電流値との関係を示すグラフである。

【図5】第3実施例における尿酸濃度と電流値との関係を示すグラフである。

【図6】第4実施例におけるコリン濃度と電流値との関係を示すグラフである。

【図7】比較例における過酸化水素濃度と電流値との関係を示すグラフである。

【符号の説明】

- | | |
|-----------------|---------------|
| 1.....過酸化水素検出素子 | 2.....絶縁性支持体 |
| 3.....金属電極 | 4.....感応膜 |
| 5.....過酸化水素透過性膜 | 6.....絶縁性シール材 |
| 7.....端子部 | 8.....リード線 |
| 9.....ポテンショスタット | 10.....ステンレ |

9

10

ス製金網

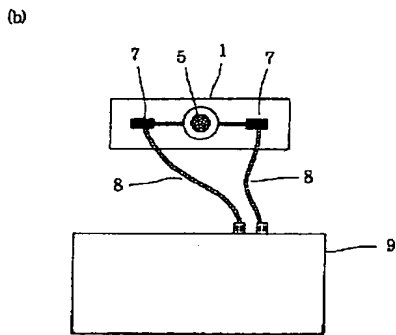
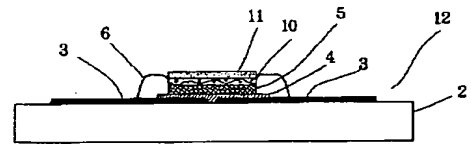
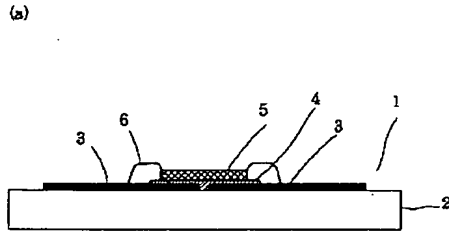
ースセンサ

1 1酵素担持体

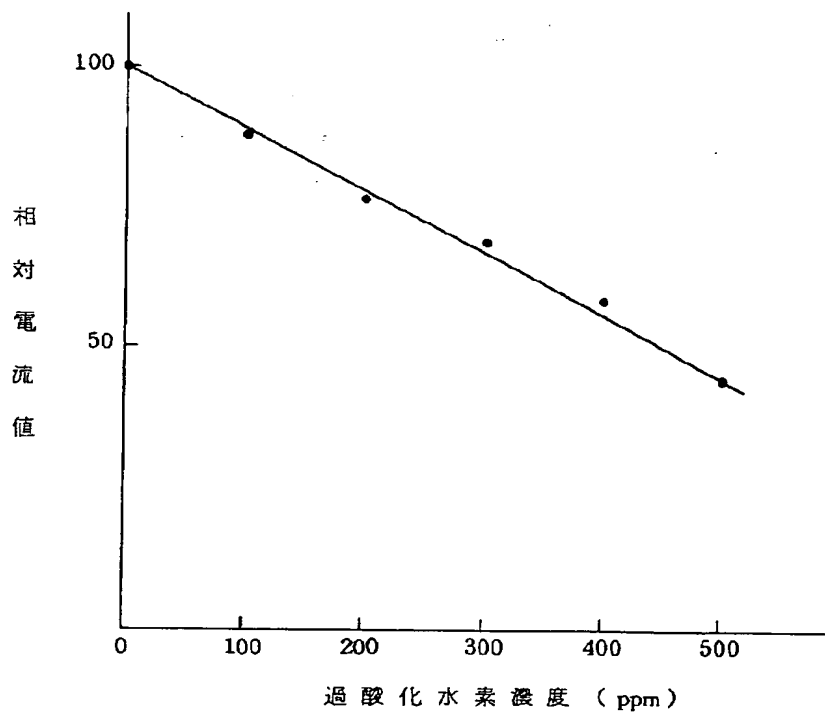
1 2グルコ

【図1】

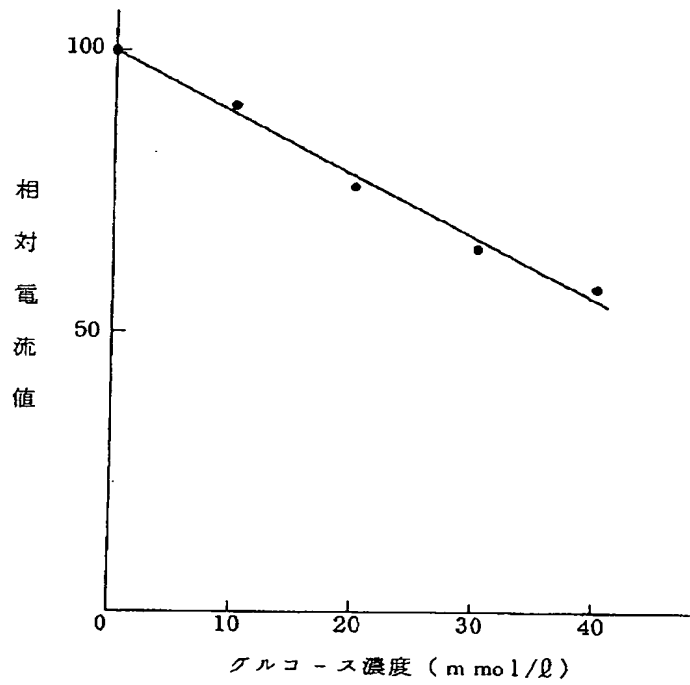
【図3】



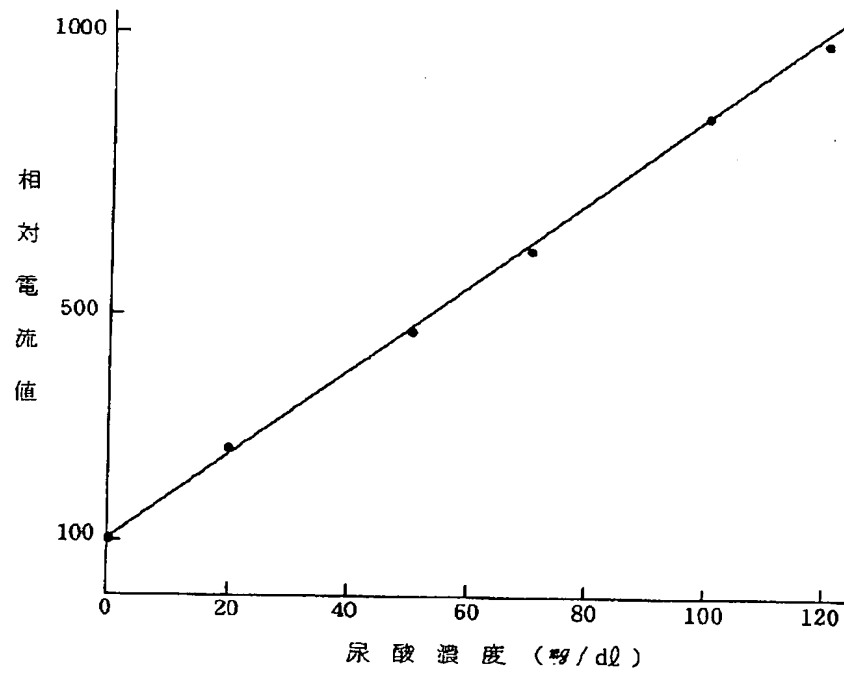
【図2】



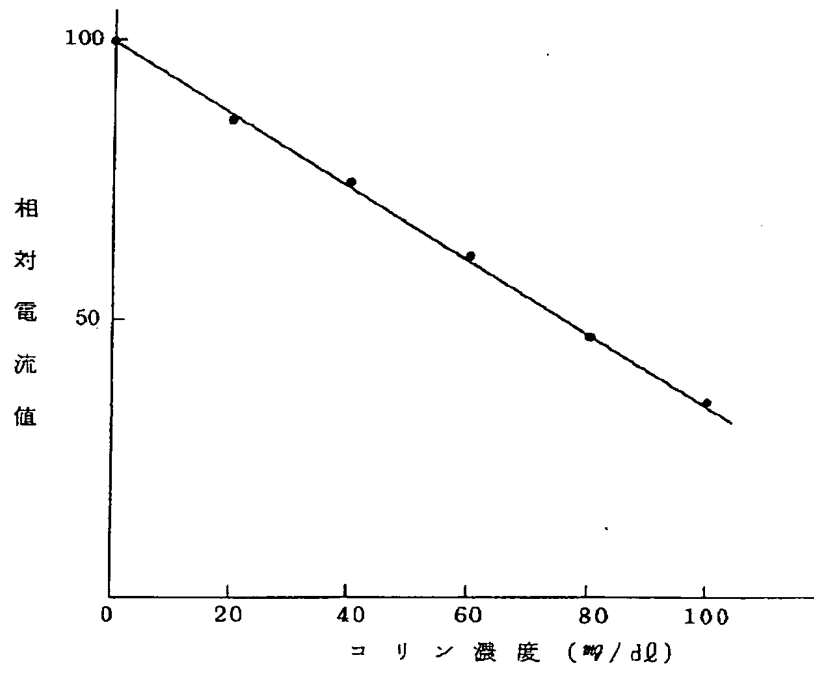
【図4】



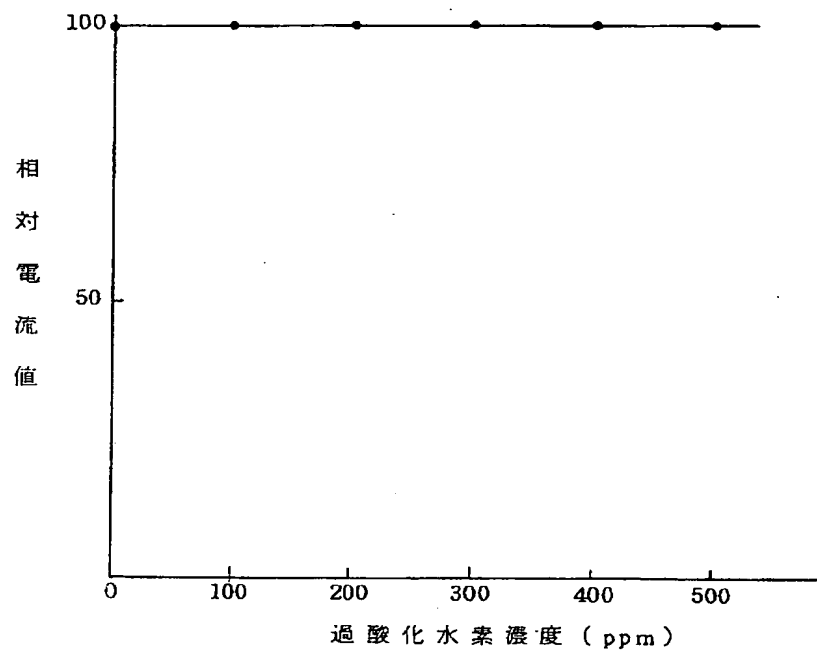
【図5】



【図6】



【図7】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.